

УДК 535.21

ПЛАЗМОННАЯ НАНООПТИКА НА ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛА

А.Л. Степанов

Аннотация

Представлены результаты экспериментальной реализации высоко эффективных двумерных оптических элементов, таких, как наночастицы и нанопроволоки, сформированных с целью управления распространением плазмон-поляритонных волн на металлической поверхности. Разделители лучей и зеркала Брегга были изготовлены методом электронно-лучевой литографии. Плазмонное ближнее поле было зафиксировано при помощи измерения плазмонных радиационных потерь, и при этом была получена количественная информация по эффективности разделения плазмонных волн на сформированных наноструктурах.

Ключевые слова: плазмонные поляритонные волны, поверхностные волны, плазмонные радиационные потери, наношели, наноструктуры, наночастицы, нанооптика.

Введение

Настоящее исследование относится к новому разделу современной фотоники, а именно наноплазмоники — оптике поверхностных электромагнитных волн, которые зарождаются при взаимодействии внешней электромагнитной волны с металлическими или полупроводниковыми наноструктурами или поверхностью [1]. Отличие новой волны от падающей исходной состоит в том, что при ее распространении происходят процессы, связанные не только с колебаниями электрического и магнитного полей, как в вакууме, но и с движением заряженных частиц (например, электронов или экситонов) внутри вещества, то есть с дополнительными электронными резонансными возбуждениями [2]. Такие волны называются поляритонными. В зависимости от типа электронного возбуждения выделяют, например, плазмон-поляритонные волны (ППВ) в металлических средах или экситон-поляритонные и фонон-поляритонные волны в полупроводниковых материалах. В определенных условиях поляритонные волны распространяются вдоль границы раздела двух разнородных сред (например, по поверхности или на интерфейсе двух сред) и обладают отличительными от обычных (объемных) электромагнитных волн свойствами. Уникальность поверхностных электромагнитных волн обусловлена высокой пространственной локализацией вдоль границы раздела сред и, как следствие, возможностью значительного усиления напряженности электромагнитного поля в них.

В настоящей работе рассматриваются особенности распространения ППВ по металлической поверхности, содержащей определенные наноструктуры в виде нанопрофилей, наночастиц или наношелей. Интерес к подобным объектам обусловлен тем, что их применение на практике позволяет конструировать миниатюрные оптические и оптоэлектрические плазмонные устройства, в которых удастся преодолеть фундаментальное дифракционное ограничение по релеевскому рассеянию света при его взаимодействии с малыми объектами [3].

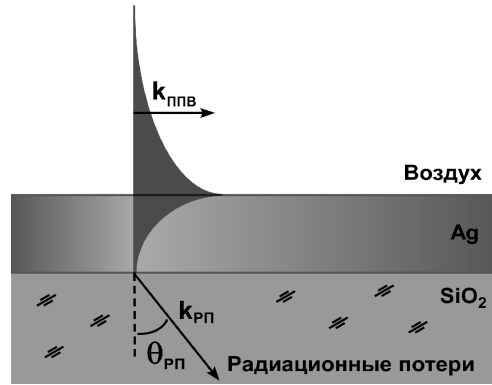


Рис. 1. Схема поперечного сечения образца, показывающая направление распределения поля ППВ и генерацию РП

Возможность возбуждения ППВ в металлических средах, в первую очередь в благородных металлах, обуславливается наличием в них повышенной концентрации свободных электронов, вызывающих под действием электромагнитного поля сильную поляризацию вещества [4]. Эти волны, распространяясь по поверхности или разделу двух разнородных сред, существуют одновременно в обеих средах. Поля, переносимые этими волнами, локализованы вблизи поверхности и экспоненциально затухают в обеих средах (рис. 1). При этом возможны плазмонные радиационные потери (РП), приводящие одновременно с омическим вкладом к затуханию ППВ.

ППВ описываются обычными волновыми уравнениями со стандартными граничными условиями, но являются их особым решением [4]. Распространение каждого из компонентов U электрического и магнитного полей на частоте ω в плоской ППВ, бегущей вдоль оси x по поверхности, имеет вид:

$$U = U_0 \exp(a_{1,2}x) \cos(\omega T - k_s x),$$

где U_0 – амплитуда волны, $a_{1,2}$ – коэффициенты затухания в каждой из сред 1 и 2, t – время.

Постоянная распространения ППВ k_s (дисперсионная зависимость) для различных частот выражается как

$$k_s = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}},$$

где $k_0 = \omega/c_0$ (c_0 – скорость света в вакууме), ϵ_1 и ϵ_2 – диэлектрические проницаемости сред 1 и 2.

ППВ могут распространяться только вдоль границ раздела сред с диэлектрическими проницаемостями разных знаков [4, 5]. При этом, например, если в одной среде $\epsilon_1 > 0$, то должны выполняться условия $\epsilon_2 < 0$ и $|\epsilon_2| > \epsilon_1$. Чаще всего в оптике имеют дело с ППВ на границе среды с воздухом ($\epsilon_1 = 1$), и условия существования ППВ выполняются для сред с высокой концентрацией свободных носителей, у которых область аномальной дисперсии охватывает ИК- и видимый диапазон частот, что характерно для множества металлов, особенно благородных. Поскольку волновой вектор ППВ k_s больше волнового вектора света k_0 (2), то для возбуждения светом ППВ требуются особые условия фазового синхронизма. Для этого на практике были разработаны несколько подходов: призмный метод,

возбуждение на топографических наноструктурах поверхности или вблизи зонда оптического микроскопа ближнего поля, а также регистрация флюоресценции полимера, находящегося в контакте с металлом [4, 5].

Благородные металлы, помимо их эффективного использования для генерации и распространения ППВ, с давних пор хорошо известны в качестве особенных наноструктурных материалов, в частности наночастиц, которые обладают уникальными оптическими свойствами, такими, как селективное поглощение или рассеяние света вследствие появления в них локализованных плазмонных возбуждений [6]. Кроме того, недавние исследования [7] демонстрируют, что ансамбли таких наночастиц, расположенные на поверхности металлической пленки, могут быть использованы для манипулирования ППВ по поверхности образца и, таким образом, могут найти применение как 2D-оптические элементы в виде плазмонных зеркал, разделителей пучков и интерферометров.

Возбуждение ППВ в определенных участках поверхности образца приводит к усилению локального поля, что позволяет вести контроль над распространением ППВ при помощи регистрации изображения распределения интенсивности плазмонного возбуждения методом оптической микроскопии ближнего поля [8, 9] либо регистрации в дальнем поле изображения распределения интенсивности флюоресценции органического соединения, наносимого на поверхность образца, и возбуждаемого ППВ [10]. Несмотря на то что методика визуализации ППВ в дальнем поле через регистрацию флюоресценции обладает существенным преимуществом за счет ее простоты, она имеет ряд принципиальных ограничений. Во-первых, регистрация флюоресценции и получение изображения распределения интенсивности ППВ может проводиться только в пределах ограниченного времени (обычно в течение нескольких секунд [10]) после начального лазерного возбуждения из-за быстрого затухания свечения органических молекул вследствие их обесцвечивания [11]. Во-вторых, интенсивность флюоресценции не является линейно пропорциональной интенсивности локального поля ППВ на исследуемой поверхности [11], и поэтому количественные оценки эффективности ППВ затруднительны.

В настоящей работе демонстрируется новая методика для получения изображения распределения поверхностной интенсивности ППВ при регистрации в дальнем оптическом поле излучения РП. Излучение РП генерируются на границе между тонкой металлической пленкой и близлежащей средой (подложкой) с более высоким показателем преломления, в нашем случае стеклом, как показано на рис. 1. Данное излучение происходит под характеристическим углом к нормали образца θ_{RP} [4], при котором обеспечивается фазовый синхронизм между ППВ- и РП-излучением в стекле, удовлетворяя соотношению $k_{SPP} = nk_0 \sin \theta_{RP}$, где k_{SPP} и nk_0 являются волновыми векторами ППВ и РП соответственно, а n – показатель преломления стекла. Так, для стекла с $n = 1.5$ соответствующий угол составляет $\theta_{RP} \sim 44^\circ$, что оказывается больше критического угла полного внутреннего отражения $\theta_{CRITICAL} \sim 41.8^\circ$, характерного для случая падения светового луча на металлическую поверхность через стеклянную среду [12, 13]. Поскольку интенсивность РП прямо пропорциональна ППВ [4], то появляется возможность при регистрации РП оценить распределение интенсивности ППВ на интерфейсе между стеклом и исследуемой металлической пленкой по площади всего образца.

1. Методика эксперимента

Оптическая схема экспериментальной установки, позволяющей регистрировать изображение поверхностного распространения интенсивности ППВ посредством измерения в дальнем оптическом поле интенсивностей РП, приведена на рис. 2. ППВ возбуждаются на топологической поверхностной структуре тонкой се-

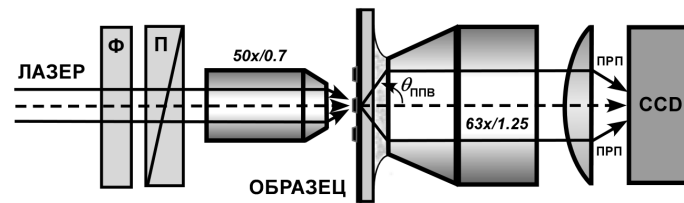


Рис. 2. Схема экспериментальной установки по регистрации карты распределения интенсивностей РП по площади образца: Ф – нейтральный фильтр, П – поляризатор, ПРП – плазмонные РП

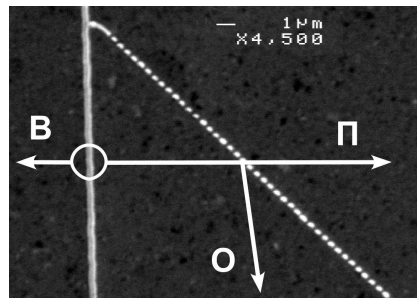


Рис. 3. Изображение топологической структуры образца, полученное на сканирующем электронном микроскопе: В – возбуждение, П – пропускание, О – отражение. Кружочком указано место возбуждения ППВ сфокусированным лазерным пучком. Стрелками указаны направления распространения ППВ

ребриной пленки при помощи перестраиваемого Ti:Sapphire-лазера, работающего в интервале длин волн от 760 до 900 нм. Лазерный луч фокусируется на образце при помощи объектива микроскопа Zeiss ($50\times$, апертура 0.7), а регистрация РП излучения проводится под углом $\theta_{\text{РП}}$ при помощи иммерсионного объектива микроскопа Zeiss ($63\times$, апертура 1.25). Полученное изображение распределения интенсивности фиксируется цифровой ПЗС-камерой (прибор с зарядовой связью). Регистрируемые камерой изображения являются проекциями ППВ на анализируемой поверхности и в каждой своей точке пропорциональны интенсивности ППВ. Каждый пиксель такого изображения отображает излучение РП, возникающее от соответствующего участка интерфейса между металлической пленкой и стеклом по площади образца, и, таким образом, позволяет количественно оценить интенсивность ППВ на каждом участке поверхности образца [14, 15].

2. Взаимодействие ППВ с наночастицами

В качестве объекта для возбуждения и наблюдения ППВ были использованы тонкие пленки серебра толщиной 70 нм с поверхностными наноструктурами, сформированными комбинацией методов электронно-лучевой литографии и электронно-лучевого распыления по методике, описанной в работе [10]. Для возбуждения ППВ на поверхности пленки [7] был сформирован топографический профиль в виде нанонити высотой 60 нм и шириной 200 нм, как это показано на снимке, полученном на сканирующем электронном микроскопе (рис. 3). Возбужденная волна, распространяясь по поверхности, взаимодействует с цепочкой наночастиц (нанодисков), расположенной под углом 45° к нанонити на расстоянии 400 нм от центра друг друга (рис. 3). Диаметр и высота наночастиц составляли 260 и 60 нм соответственно.

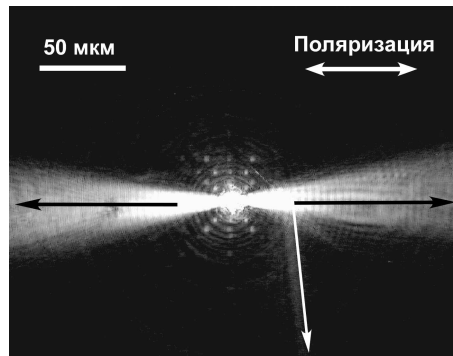


Рис. 4. Изображение распределения интенсивностей РП по площади образца, полученное на установке, приведенной на рис. 3. Стрелками указаны начальные и конечные точки, между которыми проводились измерения профилей распределения интенсивностей

Как видно из рис. 4, при облучении лазером нанонити образуются два симметрично ориентированных плазмонных пучка, распространяющихся налево и направо от точки возбуждения (направление показано темными стрелками). ППВ, направляющаяся вправо, сталкивается с препятствием в виде цепочки наночастиц и, как видно из рисунка, после взаимодействия с наночастицами частично распространяется в том же направлении, а частично отражается, как показано светлой стрелкой. На практике такая цепочная структура может быть использована в качестве делителя плазмонного пучка по аналогии с оптическим делителем, но только работающем на наномасштабном уровне при локализации волны на плоскости.

Зарегистрированное с помощью ПЗС-камеры распространение РП по плоскости образца (рис. 4) позволяет измерить профили интенсивности по выбранным направлениям. Данные оценки были проведены для ППВ-отражения, пропускания и возбуждения на цепочке наночастиц, как это указано стрелками на рис. 4. Полученные профили изменения приведены на рис. 5. Как видно из рисунка, во всех рассмотренных направлениях при удалении от точки возбуждения наблюдается экспоненциальное затухание интенсивности ППВ.

Следует отметить, что на измеряемые экспериментальные профили накладываются флуктуации интерференционного фона по поверхности образца, возникающие в оптической системе (рис. 2) и проявляющиеся в виде флуктуаций на кривых (рис. 4). Для того чтобы выделить среднюю составляющую из экспериментальных зависимостей, были смоделированы аппроксимационные кривые на основе выражения для затухания излучающего диполя на двухмерной поверхности [13]:

$$I(x) = I_0 \cdot \frac{e^{(-x+l/t)}}{x+l} + I_{\text{back}},$$

где $I(x)$ – определяемая интенсивность ППВ, I_0 – начальная интенсивность ППВ, I_{back} – интенсивность фона, t – константа затухания волны, x – расстояние от точки возбуждения лазером, l – расстояние от той же точки до места начала измерения профиля. Полученные расчетные кривые, приведенные на рис. 5, позволяют количественно оценить долевое соотношение по интенсивности между различными профилями относительно кривой возбуждения. При такой оценке доля пропускания и отражения составила 62% и 20% соответственно. Снижение начальной интенсивности ППВ на 18% следует отнести к потерям, связанным с оптическим рассеянием РР на цепочке наночастиц, а также с поглощением металлом.

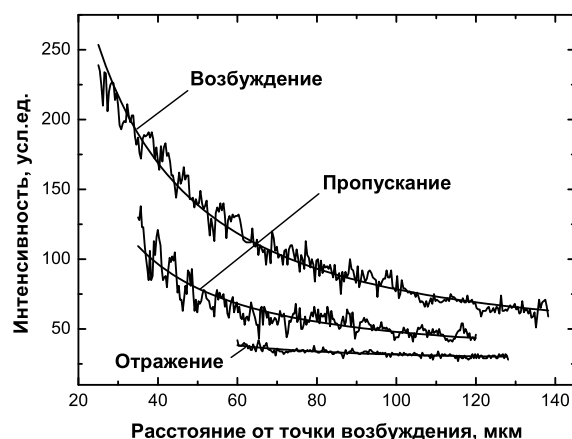


Рис. 5. Экспериментальные профили, полученные при измерении распределения интенсивностей РП, как указано на рис. 4, и соответствующие им аппроксимационные кривые

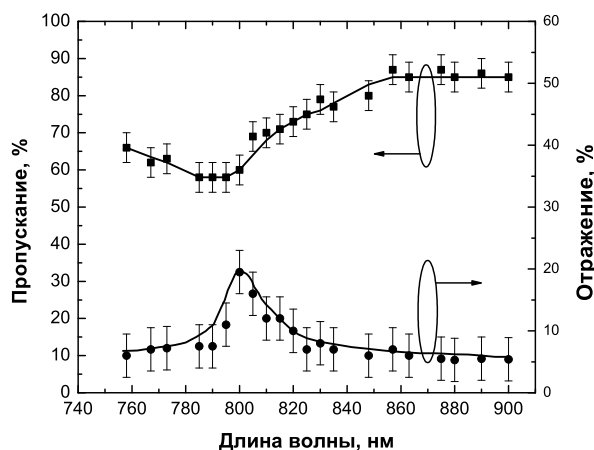


Рис. 6. Зависимость эффективности пропускания и отражения ППВ при взаимодействии с цепочкой наночастиц от длины волны возбуждающего лазера

Используем описанный подход для долевой оценки перераспределения начальной интенсивности ППВ между пропусканием и отражением в зависимости от длины волны возбуждающего лазера. Результаты представлены на рис. 6. Из полученных зависимостей видно, что в ближней ИК-области для длин волн, превышающих 875 нм, цепочка наночастиц практически прозрачна для прохождения ППВ. При этом пропускание составляет 85%, а отражение столь слабое, что не поддается измерению. Соответственно, потери ППВ на рассеяние и поглощение составляют 15% от начальной интенсивности ППВ. С другой стороны, при смещении лазерного возбуждения в более коротковолновую область пропускание монотонно снижается и демонстрирует минимум при 800 нм, после чего вновь возрастает. Синфазно с этим появляется отражение, имеющий максимум при той же длине волны, а ближе к видимой области отражение вновь пропадает. Подобное резонансное поведение в зависимости от длины волны достаточно хорошо известно и наблюдалось в спектрах экстинкции на металлических частицах, находящихся в диэлектрической среде [16]. Однако настоящие результаты демонстрируют резонанс

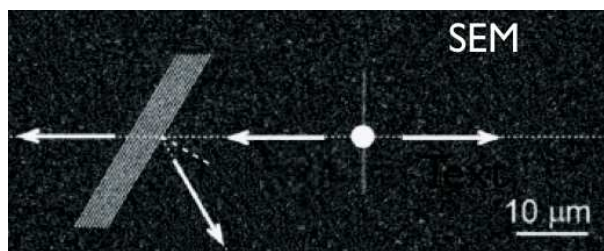


Рис. 7. Зависимость эффективности пропускания и отражения ППВ при взаимодействии с цепочкой наночастиц от длины волны возбуждающего лазера

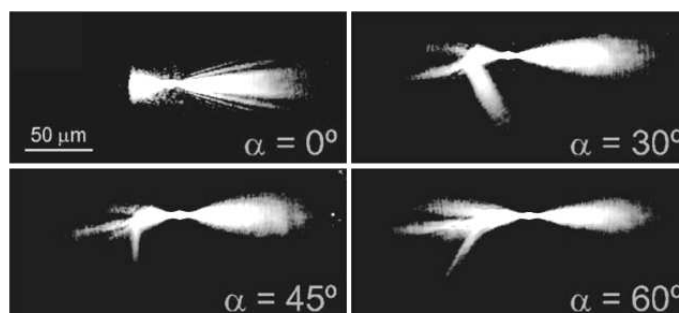


Рис. 8. Зависимость эффективности пропускания и отражения ППВ при взаимодействии с зеркалом Брегга от угла падения ППВ

для наночастиц, находящихся на металлической пленке, чего ранее экспериментально не наблюдалось, хотя и было предсказано в ряде теоретических работ, например [17].

3. Взаимодействие ППВ с нанопроволоками

В настоящем разделе приводятся результаты экспериментального наблюдения взаимодействия РП-волн, распространяющихся по поверхности тонкой пленки золота, с нанопроволоками, сформированными в ней методом электронно-лучевой литографии. Было изготовлено 10 нанопрофилей с высотой 60 нм и шириной 150 нм, толщина пленки составляла 70 нм. Данный набор нанопрофилей был выбран таким образом, чтобы организовать решетку Брегга с максимумом интенсивности отражения на длине волны лазерного излучения 800 нм. На рис. 7 приведена электронная микрофотография, полученная на сканирующем микроскопе, на ней продемонстрированы структуры зеркала Брегга и нанопрофиль, на котором возбуждаются ППВ. Стрелками показаны направления распространения волн.

На рис. 8 приведены четыре изображения распределения интенсивностей РП для различных углов α расположения зеркал Брегга по отношению к ППВ, направленной по нормали от нанопрофиля. Из рисунка видно, как в соответствии с законами геометрической оптики зеркало Брегга отражает падающую на него ППВ по разным направлениям в зависимости от угла α , тем самым демонстрируя эффективную возможность управления распространением ППВ по металлической поверхности.

Таким образом, в настоящей работе представлены экспериментальные результаты методики количественного анализа распространения поверхностных ППВ

и их взаимодействия с наноструктурами путем регистрации РП в дальнем оптическом поле. Данная методика оказывается эффективной при практическом конструировании и изготовлении поверхностных нанопотонных структур, используемых в качестве двумерных оптических элементов, таких, как точечные источники возбуждения ППВ, зеркала Брэгга, делители ППВ, интерферометры, плазмонные волноводы и др.

Автор благодарит Немецкий научный фонд им. Александра фон Гумбольдта и Австрийский научный фонд в рамках программы им. Лизы Майтнер за финансовую поддержку.

Автор выражает признательность Й.Р. Кренну (J.R. Krenn), Ф.Р. Аусснегг (F.R. Aussenegg), Х. Дитлбахер (H. Dittlbacher), А. Хохенау (A. Hohenau), А. Дрекет (A. Drezet), А. Лейтер (A. Leitner) (Университет Граца и Институт наномасштабных исследований им. Э. Шреденгера, Австрия), а также М.У. Гонзалезу (M.U. Gonzalez), Д.-С. Веебер (J.-C. Weeber), Р. Кунданту (R. Quidant) и А. Деро (A. Dereux) (Университет Дюжона, Франция) за помощь в проведении экспериментов.

Summary

A.L. Stepanov. Plasmon Nano-Optics on Metal Surface.

The experimental realization of high efficient two-dimensional optical elements, such as nanoparticles and nanowires built up from metal nanostructures to manipulate plasmon polariton propagating on metal surface is reported. Beamsplitters and Bragg mirrors produced by electron-beam lithography were investigated. The plasmon near-fields were imaged by detecting the radiation loss. The quantitative information on the plasmon beam splitter performance was estimated.

Key words: plasmon-polariton waves, surface waves, plasmon radiation loss, nanoslits, nanostructures, nanoparticles, nano-optics.

Литература

1. Климов В.В. Наноплазмоника. – М.: Физматлит, 2009. – 480 с.
2. Агранович В.М., Милиц Д.Л. Поверхностные поляритоны. – М.: Наука, 1985. – 325 с.
3. Barnes W.L., Dereux A., Ebbesen T.W. Surface plasmon subwavelength optics // Nature. – 2003. – V. 422. – P. 824–830.
4. Raether H. Surface plasmon. – Berlin: Springer, 1988. – 154 p.
5. Либенсон М.Н. Поверхностные электромагнитные волны оптического диапазона // Соровский образов. журн. – 1996. – № 1. – С. 92–98.
6. Kreibitz U., Vollmer M. Optical properties of metal clusters. – Berlin: Springer, 1988. – 533 p.
7. Krenn J.R., Dittlbacher H., Schider G., Hohenau A., Leitner A., Aussenegg F.R. Surface plasmon micro- and nano-optics // J. Microsc. – 2003. – V. 209, No 3. – P. 167–172.
8. Smolyaninov I.I., Mazzoni D.L., Mait J., Davi C.C. Experimental study of surface-plasmon scattering by individual surface defects // Phys. Rev. B. – 1997. – V. 56, No 3. – P. 1601–1611.
9. Bozhevolnyi S.I., Erland J., Leasson K., Skovgaard P.M.W., Hvam J.M. Waveguiding in surface plasmon polariton band gap structures // Phys. Rev. Lett. – 2001. – V. 86, No 14. – P. 3008–3011.

10. *Ditlbacher H., Krenn J.R., Schider G., Leitner A., Aussenegg F.R.* Two-dimensional optics with surface plasmon polaritons // *Appl. Phys. Lett.* – 2002. – V. 81, No 10. – P. 1762–1764.
11. *Barnes W.L.* Fluorescence near interfaces: the role of photonic mode density // *J. Mod. Opt.* – 1998. – V. 45, No 4. – P. 661–669.
12. *Hecht B., Bielefeldt H., Novotny L., Inouye Y., Phol D.W.* Local excitation, scattering, and interference of surface plasmons // *Phys. Rev. Lett.* – 1996. – V. 77, No 9. – P. 1889–1892.
13. *Bouhelier A., Huser Th., Tamaru H., Göntherodt H.-J., Pohl D.W., Baida F.I., van Labeke D.* Plasmon optics of structured silver films // *Phys. Rev. B.* – 2001. – V. 63, No 15. – P. 155404-1–155404-9.
14. *Drezet A., Hohenau A., Stepanov A.L., Steinberger B., Galler N., Aussenegg F.R., Leitner A., Krenn J.R.* How to erase surface plasmon fringes // *Appl. Phys. Lett.* – 2006. – V. 89, No 9. – P. 091117-1–091117-3.
15. *Drezet A., Hohenau A., Koller D., Stepanov A.L., Ditlbacher H., Steinberger B., Aussenegg F.R., Leitner A., Krenn J.R.* Leakage radiation microscopy of surface plasmon polaritons // *Mater. Sci. Engin. B.* – 2008. – V. 149, No 3. – P. 220–229.
16. *Stepanov A.L.* Optical extinction of metal nanoparticles synthesized in polymer by ion implantation // *Metal-polymer nanocomposites.* – N. Y.: John Wiley & Sons Pub., 2004. – P. 241–263.
17. *Ruppin R.* Electric field enhancement near a surface bump // *Sol. State Comm.* – 1991. – V. 39, No 8. – P. 903–906.

Поступила в редакцию
16.12.09

Степанов Андрей Львович – доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник лаборатории радиационной физики Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН и лаборатории физики магнитных наноструктур и спинтроники кафедры твердого тела Казанского (Приволжского) федерального университета.

E-mail: aanstep@gmail.com